

垂直磁化FePd薄膜におけるレーザー励起磁化ダイナミクスおよび磁気緩和に関する研究

著者	飯浜 賢志
号	60
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	工博第5205号
URL	http://hdl.handle.net/10097/00120536

氏 名	飯 浜 賢 志
授 与 学 位	博士 (工学)
学 位 授 与 年 月 日	平成28年3月25日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 応用物理学専攻
学 位 論 文 題 目	垂直磁化 FePd 薄膜におけるレーザー励起磁化ダイナミクスおよび 磁気緩和に関する研究
指 導 教 員	東北大学教授 安藤 康夫
論 文 審 査 委 員	主査 東北大学教授 安藤 康夫 東北大学教授 佐久間 昭正 東北大学教授 北上 修 東北大学教授 水上 成美 東北大学准教授 大兼 幹彦

論 文 内 容 要 旨

背景

垂直磁化膜を記録媒体として用いたハードディスクドライブは記録密度を大幅に向上させ、昨今の情報化社会を大きく支えていると言える。近年、磁気ランダムアクセスメモリ(STT-MRAM)を筆頭にスピントロニクスデバイスに垂直磁化膜を応用しようとする研究が盛んに行われている。STT-MRAM の大容量化のためには大きな熱擾乱耐性($K_u^{\text{eff}}/k_B T > 60$)を保つため、大きな垂直磁気異方性定数 K_u^{eff} を有する材料が求められている。例えば強磁性体のセルの直径が 20 nm, 膜厚が 2 nm と仮定すると, $K_u^{\text{eff}} > 4 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ が必要となる。一方で、スピン偏極電流で強磁性体を反転させるために必要な電流密度は K_u^{eff} と磁気緩和定数 α の両方に比例する。よって大きな熱擾乱耐性を保ちつつ、反転電流の低減を図るためには大きな K_u かつ小さな α を有する材料が望まれる。大きな K_u を有する材料として L_{10} -FePt 規則合金または Co/Pd, Co/Pt 多層膜等が挙げられるが、同時にこれらの材料は大きな α (> 0.04) を示すことが報告されている。一方で L_{10} -FePd 規則合金はバルクで $1.8 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ と大きな K_u を示し、また報告されている面内磁化の FePd 膜において α は比較的小さい ($\alpha \sim 0.01$)。よって STT-MRAM の大容量化に向けた材料として垂直磁化 FePd 薄膜は有望な材料として考えられる。また垂直磁化膜はスピン波伝搬素子の応用にも有望であると考えられているが、垂直磁化膜を用いた伝搬素子は今のところ報告されていないのが現状である。垂直磁化膜はスピン波の分散関係が膜面内で等方的になるため、曲がりスピン波導波路での伝搬をゼロ磁場で動作させることが可能になる。曲がりスピン波導波路での伝搬が可能になれば、スピン波を用いた論理演算素子の実現に向けた複雑な回路設計が可能となる。よってスピン波伝搬素子の材料の特性として、垂直磁化でかつ長距離伝搬する材料が要求される。静磁スピン波を長距離伝搬させるためには大きな M_s , また小さな α を有する材料が要求されるが、垂直磁化 FePd 薄膜はスピン波の長距離伝搬を実現する上で有望な材料となる。以上記述したように、垂直磁化 FePd 薄膜は大容量 STT-MRAM またスピン波伝搬素子の材料に有望な特

性を有しているが α , またスピン波伝搬長が今のところ明らかとなっていない。よって本研究の目的は, ①バルク値に近い K_u を有する垂直磁化 FePd 薄膜の作製, ②垂直磁化 FePd 薄膜における α を明らかにする, ③垂直磁化 FePd 薄膜におけるスピン波伝搬長を明らかにする, ことを目的とした。

実験方法

薄膜試料は超高真空マグネトロンスパッタ法により作製した。MgO, SrTiO₃ (STO)単結晶基板上に 20 nm の FePd 薄膜を成膜した。試料のスタック構造は以下である,

(i) MgO sub./Cr (34 nm)/Pd (17 nm)/Fe_{50.5}Pd_{49.5} (16 nm)/MgO (2 nm)/Ta (5 nm).

(ii) STO sub./Fe_{51.4}Pd_{48.6} (20 nm)/Ta (3 nm) .

FePd 薄膜の結晶構造を X 線回折(XRD), 磁気特性を VSM, 表面平坦性を AFM によって評価した。垂直磁化 FePd 薄膜の高速な磁化才差ダイナミクスを検出するため, 全光学的 pump-probe 法を用いた時間分解磁気光学カー効果(Time-Resolved Magneto-Optical Kerr Effect : TR-MOKE)によってレーザー励起磁化ダイナミクスを検出し, スピン波伝搬ダイナミクスはプローブ光スポット位置を制御可能な, 空間分解 TR-MOKE (Space- and Time-Resolved Magneto-Optical Kerr Effect : STR-MOKE)によって検出した。

実験結果1 : 高垂直磁気異方性を有する垂直磁化 FePd 薄膜の作製

MgO, STO 基板上に異なる成膜温度, アニール温度の条件において FePd 薄膜を成膜した。XRD により $L1_0$ 規則度 S を評価したところ成膜温度, アニール温度の増大に伴い S が増大することがわかった。高成膜温度, 高アニール温度において作製した FePd 薄膜において垂直磁気異方性を有することが確認できた。図1に示すのはSTO基板上に高アニール温度で作製した FePd 薄膜の磁化曲線である。明瞭に垂直磁気異方性を有することが確認できる。 K_u の値を評価したところ, $K_u = 1.3 \times 10^7 \text{erg/cm}^3$ 程度であり, 高 K_u を有する FePd 薄膜を作製した。 S の増大に伴い K_u が増大しており, $S \sim 1$ の試料においてバルク値に近い K_u を有していることが確認できた。また低成膜温度で作製することで, 平坦な膜であることも同時に確認した。

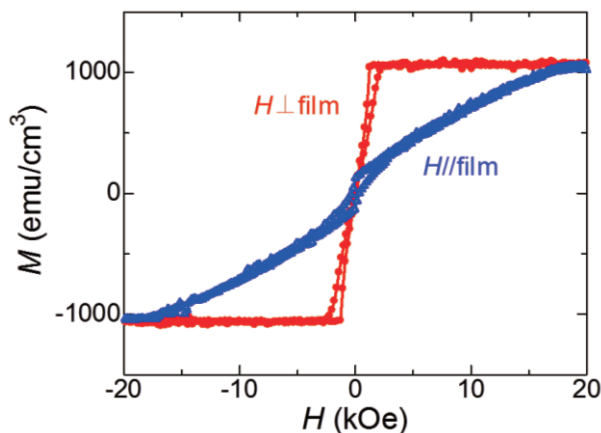


図1 VSM によって測定した STO 基板上に作製した FePd 薄膜の磁化曲線。

実験結果2 : TR-MOKE を用いた垂直磁化 FePd 薄膜における α の評価

まず高 K_u を有する試料の α を評価可能にするため, 任意の磁場角度で最大 20 kOe 印加できる電磁石を用いた TR-MOKE 測定光学系を立ち上げた。図2に高 K_u を有する垂直磁化 FePd 薄膜において構築した TR-MOKE 光学系を用いて測定した磁化才差ダイナミクスを示す。磁場角度を試料垂直方向から 50° 方向に固定し, 異なる外

部磁場(H_{ext})を最大 20 kOe まで印加し測定した結果を示す。ゼロ点付近で磁化が超高速で減少する超高速減磁が観測され、その後磁化の才差運動に起因する振動が観測されている。TR-MOKE のシグナルを以下の関数でフィッティングすることで、才差運動の周波数と緩和時間を評価した。

$$\Delta\phi_K(t) = A + Be^{-\nu t} + Ce^{-t/\tau} \sin(2\pi f t + \phi_0),$$

ここで、第 1, 2, 3 項目はそれぞれ、シグナルのオフセット、磁化の回復、磁化の才差運動に対応している。 C, f, τ, ϕ_0 はそれぞれ才差運動の振幅、周波数、緩和時間、初期位相である。実効的な磁気緩和定数(α_{eff})は以下の関係式によって評価した。

$$\alpha_{\text{eff}} = 1/2\pi f \tau.$$

α_{eff} を評価したところ、 H_{ext} に対して減少し、20 kOe の時で $\alpha_{\text{eff}} = 0.007$ という値が得られた。外部磁場を大きくすることで、磁気的不均一性による外因的な磁気緩和が抑制されることが考えられ、材料固有の α はさらに小さいことが考えられる。 α_{eff} が H_{ext} や磁場角度に依存するため、異方性分散や 2 マグノン散乱といった磁気的不均一性による外因的な磁気緩和による影響を含んでいると考えられる。よって、磁気的不均一性の寄与を取り入れた解析を行い、材料固有の α を評価した。図 3 に示すのは、異なる $L1_0$ 規則度 S を有する FePd 薄膜の α の S 依存性をプロットした結果である。異なる S を有している試料で α が 0.01 以下と小さな値を有していることがわかった。また $S = 0.6 \sim 0.8$ 近傍で最小をとり、 $S \sim 1$ 近傍で増大するような傾向を取ることがわかった。第一原理計算の結果から得られた α は 0.001 ~ 0.002 程度であり、実験的に得られた最小の α (~ 0.002) と定量的に一致することがわかった。しかしながら、第一原理計算で α の S 依存性は現状では説明できていない。

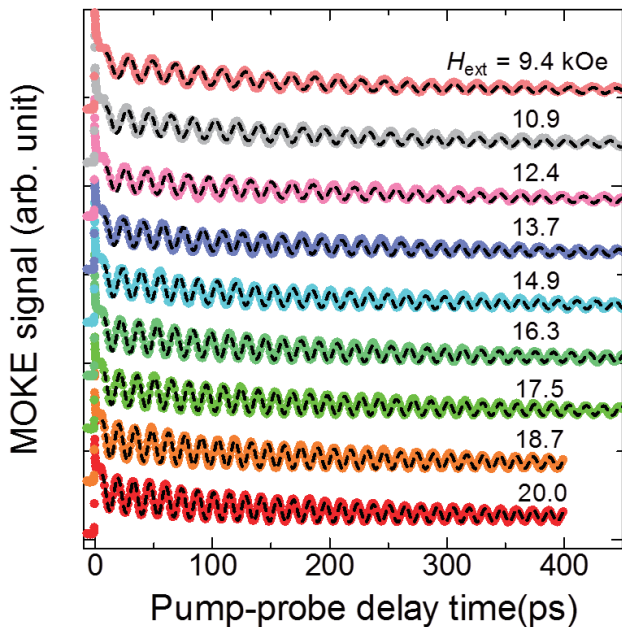


図 3 垂直磁化 FePd 薄膜における磁化才差ダイナミクス測定結果。破線はフィッティング結果を表す。

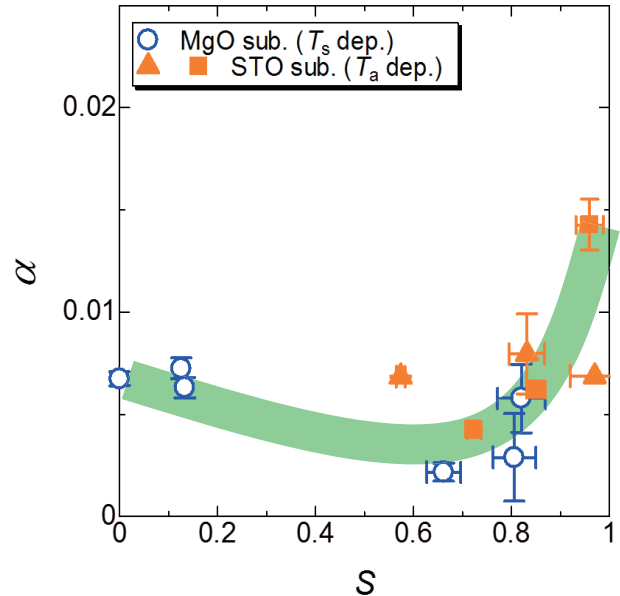


図 3 異なる $L1_0$ 規則度 S を有する FePd 薄膜の α の S 依存性。

実験結果3：STR-MOKEを用いた垂直磁化 FePd 薄膜におけるスピン波伝搬の観測

初めにレーザー励起スピン波伝搬ダイナミクスを測定するためのSTR-MOKE顕微光学系の立ち上げを行った。スピン波の伝搬を検出するため、プローブ光のスポット位置を制御可能な光学系を立ち上げた。用いた対物レンズのN.A.は0.6であり、ポンプ光とプローブ光のスポット径を測定した結果 $\sim 1.0 \mu\text{m}$ であった。次に 20 nm の Py 薄膜を用いてスピン波伝搬をSTR-MOKEを用いて観測できるかどうか検証を行った。スピン波伝搬長 $3.5 \mu\text{m}$ 程度のスピン波伝搬の観測に成功した。また観測したスピン波の伝搬長、群速度等は静磁スピン波の分散関係を考慮した線形化

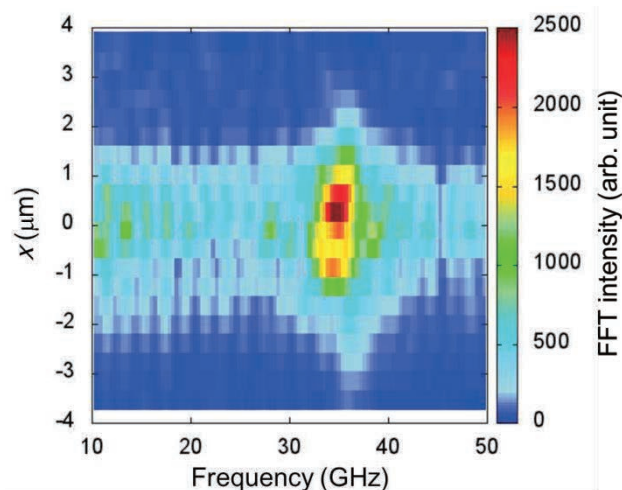


図4 垂直磁化 FePd 薄膜におけるSTR-MOKE測定結果. 異なるプローブ位置 x において得られたシグナルのFFT強度対周波数を x に対してプロットした結果を表す.

LLG 方程式のモデルによる計算で説明できることがわかった。図4に 10 nm の垂直磁化 FePd 薄膜におけるSTR-MOKE測定結果を示す。異なるプローブ光位置(x)において得られたシグナルのFFT強度対周波数を x に対してプロットした3次元カラーマップである。 35 GHz あたりに見えるピークは垂直磁化 FePd 薄膜の才差運動に起因するピークであり、プローブ光の位置がポンプ光の位置から離れるに伴い、ピークの大きさが減少していくのが確認できる。ピークの x 方向の幅が光のスポットの幅と同程度であることからポンプ光が当たっている領域で才差運動が励起され、スピン波が伝搬していないことが示唆される。よって垂直磁化 FePd 薄膜においてスピン波伝搬長が非常に短い($< 1.0 \mu\text{m}$)ということがわかった。今回用いた 10 nm の垂直磁化 FePd 薄膜のスピン波の群速度が小さいため、スピン波伝搬が観測できなかったことが考えられる。静磁スピン波の群速度は基本的に膜厚に比例するため、厚い垂直磁化 FePd 薄膜を用いることでスピン波伝搬が観測できることが期待される。

まとめ

本研究では包括的に垂直磁化 FePd 薄膜のレーザー励起磁化ダイナミクスおよび磁気緩和に関する研究を行った。これまで明らかとなっていなかった大きな垂直磁気異方性を有する FePd 薄膜の α を明らかにしたことから垂直磁化 FePd 薄膜を用いたデバイスを作製する上で非常に貢献すると考えられる。また垂直磁化薄膜におけるスピン波伝搬を観測するための測定手法を確立したことから、測定技術の開発という観点においても貢献するものであると考えられる。

論文審査結果の要旨

第1章は序論である。スピントロニクスデバイスにおける垂直磁化膜の有用性、特にスピントランスファートルクを利用した磁気メモリ (STT-MRAM) および、スピン波伝搬素子に関して、要求される特性について述べた後、これを実現するための $L1_0$ 規則合金の現状について述べている。また、本研究の手段である超高速磁化ダイナミクスとスピン波伝搬ダイナミクスに関して述べた後、目的と実現目標を掲げている。

第2章は基本理論の説明である。本論文に関係のある、磁化の才差ダイナミクス、磁気緩和、レーザー励起超高速減磁、スピン波の分散関係、スピン波伝搬ダイナミクスなどが説明されている。

第3章は実験方法である。FePd 単結晶薄膜を単結晶基板上にエピタキシャル成長させ、時間分解磁気光学カー効果 (TR-MOKE) および空間分解 TR-MOKE を行った。この測定原理に関して詳細に説明されている。

第4章は FePd 薄膜の結晶構造および磁気特性が述べられている。基板として単結晶 STO 上に作製した FePd 膜が良好な $L1_0$ 規則薄膜となることを示した。また、熱処理条件を最適化することで、平坦性が良く、異方性も大きな垂直磁化膜となることを示した。

第5章は FePd 薄膜におけるレーザー励起超高速減磁を Ni, FePt 薄膜のそれと比較している。FePd 薄膜の減磁時間 τ_M は 50 fs 以下で、Ni (150 ~ 200 fs)、FePt (200 ~ 300 fs) よりも速いことがわかった。 τ_M の順序は FePd < Ni < FePt であり、 α の順序と同じであることがわかった。微視的3温度モデルによる解析で得られたスピン反転確率は Ni で 0.11, FePd, FePt で 0.06 であり、スピン軌道相互作用の大きさに依らない結果となった。

第6章は極薄 CoFeB 垂直磁化膜ならびに高垂直磁気異方性 FePd 薄膜試料のレーザー励起磁化才差ダイナミクスならびに磁気緩和に関して詳細に調べた。CoFeB に関しては、アニール温度 T_a 依存性において、 $T_a = 250 \sim 300^\circ\text{C}$ で垂直磁気異方性が最大値を取るのに対して、 α は T_a にあまり依存しない。FePd に関しては、第一原理計算から得られた α の S 依存性の傾向を説明することはできなかったが、 α の大きさに関しては、実験結果から得られた値(最小で $\alpha \sim 0.002$) は第一原理計算から得られた値($\alpha = 0.001 \sim 0.002$) とオーダー的に一致した。

第7章は Py 薄膜ならびに FePd 薄膜試料のスピン波伝搬ダイナミクスの測定結果を記述した。20 nm の Py 薄膜においてレーザー励起スピン波伝搬の観測に成功した。得られたスピン波の振幅、群速度、周波数、波束幅、初期位相はガウシアン空間分布の磁場が励起するスピン波の計算でよく説明できることがわかった。20 nm 面内磁化 FePd 薄膜においても Py 試料と同様にスピン波伝搬を観測した。面内磁化 FePd 試料のスピン波伝搬長は Py 試料に比べ短いことがわかった。垂直磁化 FePd 試料においてスピン波伝搬の観測を試みた。膜厚 10 nm の垂直磁化 FePd 試料においてスピン波伝搬は観測できず、スピン波伝搬長が $1 \mu\text{m}$ 以下と非常に短いことがわかった。

第8章は総括である。本研究では包括的に垂直磁化 FePd 薄膜のレーザー励起磁化ダイナミクスおよび磁気緩和に関する研究を行った。これまで明らかとなっていなかった大きな垂直磁気異方性を有する FePd 薄膜の α を明らかにしたこと、物性物理学的に非常に価値があると考えられる。さらに、本研究で得られた知見は他の材料におけるレーザー励起磁化ダイナミクスの調査を行う上でも非常に貢献すると考えられる。本結果は無磁場動作に関して実験と理論の両観点から包括的に議論した極めて貴重な結果であり、スピントロニクスデバイスの研究、開発ならびに応用物理学の発展に大きく貢献するものである。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。